

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 08-325543

(43)Date of publication of application : 10.12.1996

(51)Int.Cl.

C09J133/06

C09J 9/02

H01B 1/22

H05K 1/09

(21)Application number : 07-138342

(71)Applicant : SOKEN CHEM & ENG CO LTD

(22)Date of filing : 05.06.1995

(72)Inventor : OKADA YUKO
SUZUKI KENJI

(54) ANISOTROPICALLY ELECTROCONDUCTIVE ADHESIVE

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain an anisotropically electroconductive adhesive comprising an adhesive component having insulating properties and metal-containing particles dispersed into the adhesive component, bondable at a low temperature under low pressure in a short time, useful for electric connection between wiring boards having a wiring pattern on the surface of the boards.

CONSTITUTION: This adhesive comprises (A) an adhesive component having insulating properties, containing (i) an acrylic adherent component, (ii) a reactive component containing at least two (meth)acryloyl groups, (iii) a polymerization initiator and (B) a metal-containing particles (e.g. metal particles, insulation film coated metal particles obtained by coating the surface of metal particles with an insulating component, etc.) dispersed into the adhesive component, is cured by heating or by light irradiation and bonded to a material to be bonded. The component A comprises preferably 1-100 pts.wt. of the component (ii) based on 100 pts.wt. of the component (i) and 0.5-10 pts.wt. of the polymerization initiator based on 100 pts.wt. of the component (ii).

LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 15.01.2002

[Date of sending the examiner's decision of rejection] 21.04.2004

[Kind of final disposal of application other than the
examiner's decision of rejection or application
converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of
rejection][Date of requesting appeal against examiner's decision
of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平8-325543

(43)公開日 平成8年(1996)12月10日

(51)Int.Cl. ⁶	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 9 J 133/06	J D C		C 0 9 J 133/06	J D C
9/02	J A S		9/02	J A S
H 0 1 B 1/22			H 0 1 B 1/22	D
H 0 5 K 1/09		7511-4E	H 0 5 K 1/09	D

審査請求 未請求 請求項の数9 O L (全 11 頁)

(21)出願番号 特願平7-138342

(22)出願日 平成7年(1995)6月5日

(71)出願人 000202350

綜研化学株式会社

東京都豊島区高田3丁目29番5号

(72)発明者 岡 田 裕 宏

埼玉県狭山市上広瀬130 綜研化学株式会
社内

(72)発明者 鈴 木 健 司

埼玉県狭山市上広瀬130 綜研化学株式会
社内

(74)代理人 弁理士 鈴木 俊一郎

(54)【発明の名称】 異方導電性接着剤

(57)【要約】

【構成】 本発明の異方導電性接着剤は、絶縁性を有する接着剤成分と該接着剤成分中に分散された金属含有粒子からなる異方導電性接着剤であり、この接着剤成分が、アクリル系接着性成分と、(メタ)アクリロイル基をなくとも2個有する反応性成分と、重合開始剤とを含有することにより、この接着剤成分が、加熱または光照射によって硬化し、被着体を異方導電的に接合する。

【効果】 本発明の異方導電性接着剤によれば、穏和な条件で基板を異方導電接着することができ、環境の変化によっても、接着性能、電気的特性が変動しにくい。従ってファインピッチで形成された基板の接着に特に適する。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 絶縁性を有する接着剤成分と該接着剤成分中に分散された金属含有粒子からなる異方導電性接着剤であり、

該接着剤成分が、アクリル系接着性成分と、(メタ)アクリロイル基を少なくとも2個有する反応性成分と、重合開始剤とを含有することにより、該接着剤成分が、加熱または光照射によって硬化し、被着体を接合することを特徴とする異方導電性接着剤。

【請求項2】 上記接着剤成分が、アクリル系接着性成分と、該アクリル系接着性成分100重量部に対して、1~100重量部の(メタ)アクリロイル基を少なくとも2個有する反応性成分と、この(メタ)アクリロイル基を少なくとも2個有する反応性成分100重量部に対して0.5~10重量部の重合開始剤とを含有することを特徴とする請求項第1項記載の異方導電性接着剤。

【請求項3】 上記重合開始剤が、熱重合開始剤または光重合開始剤であることを特徴とする請求項第1項記載の異方導電性接着剤。

【請求項4】 上記アクリル系接着性成分が、炭素数1~8のアルキル基を有する(メタ)アクリル酸エステル60~99.9重量部と、官能基を有する単量体0.1~20重量部、前記(メタ)アクリル酸エステルおよび官能基を有する単量体以外の単量体0~20重量部とを共重合させることにより形成される、GPC分析によるポリスチレン換算での重量平均分子量が10万~200万の範囲内にある共重合体であることを特徴とする請求項第1項記載異方導電性接着剤。

【請求項5】 上記接着剤成分中に、さらに、重合開始剤100重量部に対して、0.01~50重量部の重合禁止剤を含有することを特徴とする請求項1項乃至第4項のいずれかの項記載の異方導電性接着剤。

【請求項6】 上記接着剤成分が、さらに、アクリル系接着性成分100重量部に対して、5~50重量部の無機微粒子を含有することを特徴とする請求項第1項乃至第4項のいずれかの項記載の異方導電性接着剤。

【請求項7】 上記無機微粒子が、平均粒子径が0.05~5.0 μ mの範囲内にあり、かつ金属含有粒子の1/2以下の平均粒子径を有することを特徴とする請求項第1項または第6項記載の異方導電性接着剤。

【請求項8】 上記金属含有粒子が、絶縁性芯材粒子の外周面に金属層が設けられた粒子、または、絶縁性芯材粒子の外周面に金属層が設けられ、かつ該金属層表面に加熱および/または加圧により除去可能な絶縁性層が形成された粒子であって、該金属含有粒子の平均粒子径が、接着しようとする配線パターンのうち導電性粒子が配置されるパターントップ幅の1/2以下であることを特徴とする請求項第1項記載の異方導電性接着剤。

【請求項9】 上記異方導電性接着剤が、アクリル系接着性成分を不揮発分が20~40重量%になるように溶

解または分散させ、25℃における粘度が50~500 poise/25℃の範囲内に調整した有機溶媒溶液または分散液に金属含有粒子を分散させた塗布液を、離型フィルムに塗布して乾燥させた、テープ状またはシート状の形態を有することを特徴とする請求項第1項乃至第8項のいずれかの項記載の異方導電性接着剤。

【発明の詳細な説明】**【0001】**

【発明の技術分野】 本発明は、基板表面に配線パターンが形成された配線基板を相互に接着するとともに、配線パターンを相互に電氣的に接続するための異方導電性接着剤に関する。

【0002】

【発明の技術的背景】 基板表面に配線パターンが形成された配線基板どうしをその配線パターンが対面した状態で対峙する配線パターンを導通させると共に両基板を接着する接着剤として、たとえば、熱溶融性で電気絶縁性の接着性成分あるいはエポキシ樹脂のように反応硬化性樹脂中に導電性粒子が分散された接着剤組成物から形成されたシートの接着剤(連結シート)が知られている(特開昭62-206772号公報、特開昭62-40183号公報および特開昭62-40184号公報、特開平5-21094号公報および特開昭60-140790号公報参照)。

【0003】 この連結シートを二枚の配線基板の間に挟んだ状態で加熱加圧すると、絶縁性接着性成分は重なりあった配線パターンの横方向に移行して導電性粒子だけが配線パターンによって挟持された状態になり、この部分の電氣的接続を挟持された導電性粒子を介して行うことができると共に、連結シートを形成する絶縁性接着性成分によって二枚の配線基板を接着することができる。

【0004】 上記のような粒子が分散される異方導電性接着剤における絶縁性接着性成分としては、熱可塑性接着剤が多く用いられていた。このような熱可塑性接着剤を使用することにより、比較的低温で短時間加熱加圧することにより接着することができるのと利点がある。

【0005】 しかしながら、このような熱可塑性接着剤を用いた異方導電性接着は、絶縁性接着性成分である熱可塑性接着剤が十分な経時的安定性を有しているとは言えない面がある。即ち、接着性成分が熱可塑性接着剤である異方導電性接着剤を用いて接着された配線基板を、例えば長期間高温高湿条件で使用する等、過酷な条件で使用すると、接着性成分が可塑化して流動を有するようになることがある。そして、接着成分の流動に伴って、配線パターンの間に保持された導電性粒子が移動することがあり、配線パターン間の導電性、即ち電気抵抗値が不安定になる。

【0006】 このような問題を解消するために、絶縁性接着性成分として、エポキシ樹脂のような熱硬化性樹脂を使用することも提案されている。接着性成分として熱硬化性樹脂を使用すると、上記のような耐湿熱安定性、

信頼性が大幅に改善できるが、こうした熱硬化性樹脂は、一般に可使時間が短く、圧着条件が高温でかつ長時間になるという問題がある。例えばエポキシ系の熱硬化性接着剤を使用する場合は170~180℃の加熱条件で40~50kg/cm²の圧力をかけながら20~30秒加熱して接着しているのが一般的であり、加熱温度および加熱時間が短いと硬化が不十分であり、十分な接着強度及び導通信頼性が得られない。

【0007】近年、異方導電性接着が必要とされている精密電子機器の分野では、回路の高密度化がはかられており、異方導電性接着をする配線パターンは狭く、かつ薄くなってきている。特に液晶素子の透明金属薄膜（ITO=酸化インジウム）からなる基板に形成された配線パターンと、ドライバーICを搭載したTCP（テープキャリアパッケージ）とを接合、導通させる際には、隣接する電極間隔がきわめて狭く、また、配線が細いために、従来の異方導電性接着条件で接着すると、配線が脱落、剥離したり、またさらに、基板自体も損傷を受けることがある。他方、接着性成分が熱可塑性接着剤である異方導電性接着剤を用いて、こうした液晶の配線パターンを異方導電性接着しても、液晶の使用温度の変化に伴って接着剤成分が軟化するため、接着剤中の導電性粒子の移動、基板のずれ等により基板間の電気的特性が低下するという問題がある。

【0008】

【発明の目的】本発明は、低温、低圧で、かつ短時間で接着が可能な異方導電性接着剤を提供することを目的としている。

【0009】さらに本発明は、低温、低圧で、かつ短時間の接着により硬化して、良好な接着強度および異なる基板の配線パターン間に良好な導通性を発現させることができると共に、この接着強度および導通性を長期間確保することができる異方導電性接着剤を提供することを目的としている。

【0010】

【発明の概要】本発明の異方導電性接着剤は、絶縁性を有する接着剤成分と該接着剤成分中に分散された金属含有粒子からなる異方導電性接着剤であり、該接着剤成分が、アクリル系接着性成分と、（メタ）アクリロイル基を少なくとも2個有する反応性成分と、重合開始剤とを含有することにより、該接着剤成分が、加熱または光照射によって硬化し、被着体である基板を、異方導電的に接合（即ち、2枚の基板表面に形成された配線パターンを対峙するように配置し、この対峙する配線パターン間に導通性を確保するように接着）することを特徴としている。

【0011】本発明の異方導電性接着剤は、上記のようにアクリル系接着性成分、（メタ）アクリロイル基を2個以上有する反応性成分および重合開始剤とを含有する接着剤成分中に金属含有粒子が分散されており、この接

着性成分は、絶縁性を示すと共に加熱あるいは光照射によって、対峙する2枚の基板を異方導電的に接着させることができる。

【0012】そして、従来の熱可塑性アクリル系接着剤とは異なり、本発明の異方導電性接着剤に配合された接着剤成分は、加熱あるいは光照射前には、接着剤として適正な流動性を有しているが、（メタ）アクリロイル基を2個以上有する反応性成分および重合開始剤を配合し、この接着剤に加熱操作あるいは光照射を行うことにより、このアクリル系接着剤は硬化してその流動性は消失する。

【0013】

【発明の具体的説明】以下、本発明の異方導電性接着剤について具体的に説明する。本発明の異方導電性接着剤は、絶縁性を有する接着剤成分と、この接着剤成分中に分散された金属含有粒子からなる。

【0014】この接着剤成分は、アクリル系接着性成分と、（メタ）アクリロイル基を少なくとも2個有する反応性成分と、重合開始剤とを含有している。ここでアクリル系接着性成分は、通常は、アルキル（メタ）アクリレートと、官能基含有モノマーと、他の単量体との共重合体である。

【0015】本発明において使用されるアルキル（メタ）アクリレートの例としては、メチル（メタ）アクリレート、エチル（メタ）アクリレート、イソプロピル（メタ）アクリレート、n-ブチル（メタ）アクリレート、イソブチル（メタ）アクリレート、2-エチルヘキシル（メタ）アクリレート、イソオクチル（メタ）アクリレート、ラウリル（メタ）アクリレート、ステアリル（メタ）アクリレートおよびシクロヘキシル（メタ）アクリレート等；アルコキシアルキル（メタ）アクリレートの例としては、メトキシエチル（メタ）アクリレートおよびエトキシエチル（メタ）アクリレート等を挙げることができる。これらは単独であるいは組み合わせて使用することができる。特に本発明では炭素数1~8のアルキル基を有する（メタ）アクリル酸エステルを使用することが好ましい、本発明の接着性成分を構成するアクリル系接着性成分には、上記アルキル（メタ）アクリレート（（メタ）アクリル酸アルキルエステル）から誘導される繰返し単位は、通常は60~99.9重量%、好ましくは78~97.5重量%の量で共重合している。

【0016】また、官能基含有モノマーに導入されている官能基の例としては、カルボキシル基、水酸基、アミド基、メチロール基およびエポキシ基を挙げることができる。上記のような官能基が導入された官能基含有モノマーの例としては、（メタ）アクリル酸、β-カルボキシエチルアクリレート、イタコン酸、クロトン酸、マレイン酸、無水マレイン酸およびマレイン酸ブチルなどのカルボキシル基を含有するモノマー、2-ヒドロキシエチ

ル(メタ)アクリレート、2-ヒドロキシプロピル(メタ)アクリレート、クロロ-2-ヒドロキシプロピル(メタ)アクリレート、ジエチレングリコールモノ(メタ)アクリレートおよびアリルアルコールなどの水酸基を含有するモノマー、アミノメチル(メタ)アクリレート、ジメチルアミノエチル(メタ)アクリレート、ビニルピリジン、(メタ)アクリルアミド、N-メチル(メタ)アクリルアミドおよびN-エチル(メタ)アクリルアミドなどのアミド基を含有するモノマー、N-メチロール(メタ)アクリルアミドおよびジメチロール(メタ)アクリルアミドなどのアミド基とメチロール基とを含有するモノマーならびにグリシジル(メタ)アクリレートなどのエポキシ基を含有するモノマーなどを挙げることができる。これらは単独であるいは組み合わせて使用することができる。本発明の接着性成分を構成する共重合体には、上記官能基含有モノマーから誘導される繰返し単位が、通常は0~20重量%、好ましくは2~10重量%の量で共重合している。

【0017】さらに、上記単量体以外にも、本発明で接着性成分を形成する他のモノマーとして、スチレン系モノマーおよびビニル系モノマーを挙げることができる。具体的にはスチレン系モノマーの例としては、スチレン、メチルスチレン、ジメチルスチレン、トリメチルスチレン、エチルスチレン、ジエチルスチレン、トリエチルスチレン、プロピルスチレン、ブチルスチレン、ヘキシルスチレン、ヘプチルスチレンおよびオクチルスチレン等のアルキルスチレン；フロロスチレン、クロロスチレン、ブロモスチレン、ジブロモスチレンおよびヨードスチレン等のハロゲン化スチレン；さらに、ニトロスチレン、アセチルスチレンおよびメトキシスチレン等を挙げることができる。

【0018】また、ビニル系モノマーの例としては、ビニルピリジン、ビニルピロリドン、ビニルカルバゾール、酢酸ビニル、フェニルマレイミドおよびアクリロニトリル；ブタジエン、イソプレンおよびクロロプレン等の共役ジエンモノマー；塩化ビニルおよび臭化ビニル等のハロゲン化ビニル；塩化ビニリデン等のハロゲン化ビニリデン等を挙げることができる。

【0019】これらのモノマーは、単独であるいは組み合わせて使用することができる。本発明の接着剤を構成する共重合体中に上記他のモノマーは、通常は0~20重量%、好ましくは0~10重量%の量で共重合させることができる。

【0020】本発明の接着剤成分を構成するアクリル系共重合体は、例えば、上記のようなモノマーを反応溶媒に投入して、反応系内の空気を窒素ガス等の不活性ガスで置換した後、必要により反応開始剤の存在下に、加熱攪拌して重合反応させることにより製造することができる。

【0021】ここで用いられる反応溶媒としては、有機

溶媒が使用され、具体的には、トルエンおよびキシレン等の芳香族炭化水素類、n-ヘキサン等の脂肪族炭化水素類、酢酸エチルおよび酢酸ブチル等のエステル類、n-プロピルアルコールおよびiso-プロピルアルコール等の脂肪族アルコール類、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトンおよびシクロヘキサノン等のケトン類を挙げることができる。

【0022】また、反応開始剤を使用する場合には、例えばアゾビスイソブチロニトリル、ベンゾイルパーオキサイド、ジ-tert-ブチルパーオキサイドおよびクメンハイドロパーオキサイド等を使用することができる。

【0023】上記の重合反応の反応温度は通常は50~90℃、反応時間は通常は2~20時間、好ましくは4~12時間である。また、反応溶媒はモノマーの合計量100重量部に対して50~300重量部の量で使用される。さらに、反応開始剤は、通常は0.01~10重量部の量で使用される。

【0024】上記のようにして得られるアクリル系接着成分のGPC分析によるポリスチレン換算値での重量平均分子量は、通常は10万~200万、好ましくは30万~150万の範囲内にある。

【0025】また、上記のように溶液中で重合することにより、通常は、不揮発分濃度が20~40重量%、好ましくは20~30重量%、25℃における溶液の粘度が50~500poise/25℃、好ましくは50~200poise/25℃の範囲内にあるアクリル系接着剤溶液が得られる。

【0026】本発明では、このようなアクリル系接着性成分溶液から少なくとも一部の溶媒を除去した後、必要により生成し、さらに新たに他の溶媒を加えてアクリル系接着剤を溶解もしくは分散させて使用することもできるが、上記のような原料モノマーを共重合させることにより得られるアクリル系接着剤の有機溶媒溶液をそのまま使用することが好ましい。

【0027】上記のようにして得られるアクリル系接着性成分は、熱可塑性であり、常温で、粘着性を有している。本発明で用いられる絶縁性を示す接着剤成分は、上記のようなアクリル系接着性成分と、(メタ)アクリロイル基を少なくとも2個有する反応性成分と、重合開始剤とを含有している。

【0028】本発明で使用されるオリゴマーおよびプレポリマーとは、単位構造体の繰返し回数(重合度)が、2~20程度の重合体であり、一般的な概念では、また重合度が充分ではなく、高分子化合物とはなっていないポリマー(高分子化合物)一步手前の重合物である。

【0029】ここで(メタ)アクリロイル基を少なくとも2個有する反応性成分としては、(メタ)アクリロイル基を2個以上有する多官能モノマー、(メタ)アクリロイル基を2個以上有するオリゴマーまたはプレポリマ

一を挙げることができる。

【0030】ここで(メタ)アクリロイル基を2個以上有する多官能モノマーの例としては、エチレングリコールジ(メタ)アクリレート、ネオペンチルグリコールジアクリレート、1,6-ヘキサンジオールジ(メタ)アクリレート、トリメチロールプロパントリアクリレートおよびペンタエリスリトールトリアクリレート等を挙げることができる。

【0031】また、(メタ)アクリロイル基を2個以上有するオリゴマーおよびプレポリマーの例としては、ポリエチレングリコールジ(メタ)アクリレート、ペンタエリスリトールトリアクリロイルヘキサメチレンジイソシアネートおよびビスフェノールA-ジエポキシ(メタ)アクリレート等を挙げることができる。

【0032】これらは単独であるいは組み合わせて使用することができる。このような(メタ)アクリロイル基を少なくとも2個有する反応性成分は、通常のラジカル重合反応と同様に、本発明における接着剤成分中に含有される重合開始剤が活性化されるのに伴って、活性化された開始剤が開裂して発生した開始剤ラジカルが、エチレン性不飽和成分の開裂および連鎖反応を誘発し、反応性成分が高分子化網目構造または高分子IPN構造を形成する。

【0033】上記のような(メタ)アクリロイル基を少なくとも2個有する反応性成分は、アクリル系接着性成分100重量部に対して、通常は、1~100重量部、好ましくは5~50重量部、特に好ましくは10~40重量部の量で使用される。上記のような量で(メタ)アクリロイル基を少なくとも2個有する反応性成分を配合することにより、本発明の接着性成分が、後述する重合開始剤によって活性化されて高分子網目構造または高分子IPN構造を形成し、こうした架橋構造の形成に伴って本発明の接着性成分は硬化して、熱可塑性を示さなくなる。さらに、上記のような量で(メタ)アクリロイル基を少なくとも2個有する反応性成分を配合すると、硬化前には、この(メタ)アクリロイル基を少なくとも2個有する反応性成分が流動化剤として作用してこの接着性成分が良好な流動性を有するようになる。

【0034】本発明において、接着性成分には、さらに重合開始剤が含有されている。本発明で重合開始剤として、熱重合開始剤および/または光重合開始剤を使用することができる。

【0035】本発明で使用される熱重合開始剤としては、有機過酸化化物、無機過酸化化物およびアゾ系熱重合開始剤などを挙げることができる。ここで有機過酸化化物系の熱重合開始剤の例としては、ベンゾイルパーオキサイド、ラウロイルパーオキサイド、オクタノイルパーオキサイドおよび3,5,5-トリメチルヘキサノイルパーオキサイドを挙げることができる。

【0036】また、無機過酸化化物系の熱重合開始剤の例

としては、過硫酸カリウムおよび過硫酸アンモニウムを挙げることができる。さらに、アゾ系熱重合開始剤の例としては、アゾビスイソブチロニトリル、2,2'-アゾビス-2-メチルブチロニトリルおよび4,4'-アゾビス-4-シアノバレリクアシッドを挙げることができる。

【0037】上記のような熱重合開始剤は、単独であるいは組み合わせて使用することができ、また、接合する際の加熱温度により適宜選定することで、短時間硬化を可能にすることができる。

【0038】また、本発明では上記のような熱重合開始剤の代わりに、あるいは熱重合開始剤と共に光重合開始剤を使用することもできる。本発明では光重合開始剤として、カルボニル化合物、イオウ化合物およびアゾ系化合物を使用することができる。

【0039】ここで光重合開始剤の例としては、アセトフェノン、ベンゾフェノン、ベンジルベンゾイン、ベンゾインエーテル、アゾイソブチロニトリル、ベンゾイルパーオキサイドおよびジターシャールブチルパーオキサイドを挙げることができる。

【0040】このような重合開始剤を配合することにより、接着性成分中に上述した(メタ)アクリロイル基を少なくとも2個有する反応性成分による高分子網目構造または高分子IPN構造が形成されて、こうした構造が形成された後は、加熱すると可塑化するという特性は消失する。

【0041】上記のような重合開始剤は、(メタ)アクリロイル基を少なくとも2個有する反応性成分100重量部に対して、通常は0.1~10重量部、好ましくは1~7重量部の量で配合されている。上記のような量で重合開始剤を配合することにより、前述の(メタ)アクリロイル基を少なくとも2個有する反応性成分によって高分子網目構造または高分子IPN構造が形成されて硬化体が形成されるので、接着後にこの接着成分が流動性を示すことがなくなる。従って、本発明の異方導電性接着剤を使用して接着した基板は、高温高温条件下で使用した場合であっても、この基板の接着強度および電気的特性が変動しにくくなる。

【0042】さらに、上記接着性成分には、架橋剤が含有されていてもよい。この架橋剤は、上述の(メタ)アクリロイル基を少なくとも2個有する反応性成分とは異なり、重合開始剤が存在しなくとも架橋構造を形成し得る化合物である。

【0043】このような架橋剤の例としては、N,N,N',N'-テトラグリシジルメタキシレンジアミンおよびトリレンジイソシアネートトリメチロールプロパン、ヘキサメチレンジイソシアネート、ビスイソフタロイル-1-(2-メチルアジリジン)およびテトラメチロールメタン-トリ-β-アジリジニルプロピオネートを挙げることができる。

【0044】このような架橋剤は、アクリル系接着性成

分100重量部に対して、通常は、0~10重量部、好ましくは0~1重量部の量で配合される。さらに、本発明で使用される接着性成分中には、例えば保存・搬送時等に上記の重合開始剤の反応による重合反応を抑制するために、キノン類あるいは芳香族ニトロ化合物のような重合禁止剤を配合することが好ましい。

【0045】ここで重合禁止剤の例としては、ハイドロキノンおよびメチルエーテルハイドロキノンを挙げることができる。このように重合禁止剤を使用する場合には、重合禁止剤は、重合開始剤100重量部に対して、通常は、0.01~50重量部、好ましくは1~50重量部、特に好ましくは5~30重量部の量で配合される。上記のような量で重合禁止剤を配合することにより、保存・移送時等、予定していない状況下における重合反応の進行を抑制することができると共に、加熱圧着時あるいは照射圧着時における(メタ)アクリロイル基を少なくとも2個有する反応性成分の反応性が損なわれることがない。

【0046】さらに、本発明で使用される絶縁性を有する接着性成分には、例えばシランカップリング剤のような各種カップリング剤を配合することが好ましい。このカップリング剤は、アクリル系接着性成分100重量部に対して、通常は0.5~3重量部、好ましくは1~2重量部の量で配合される。

【0047】本発明の異方導電性接着剤は、上記のような成分からなる接着性成分中に金属含有粒子が分散されている。本発明で使用される金属含有粒子には、金属粒子、金属粒子の表面が絶縁性成分で被覆された絶縁被覆金属粒子、絶縁性芯材の表面に金属層が形成された金属被覆粒子、絶縁性芯材の表面に金属層が形成され、さらにこの金属層が絶縁性成分で被覆された絶縁被覆粒子などがある。

【0048】ここで使用される金属粒子としては、ハンダ、Zn、Al、Sb、U、Cd、Ga、Ca、Au、Ag、Co、Sn、Se、Fe、Cu、Th、Pb、Ni、Pd、Be、MgおよびMnなどが用いられる。これら金属は単独で用いても2種以上を用いてもよく、さらに硬度、表面張力などの改質のために他の元素、化合物などを添加してもよい。

【0049】また、絶縁被覆金属粒子は、上記のような金属粒子の表面が、接着の際の加圧(さらに加熱)によって金属粒子表面を露出させることができる絶縁性成分で被覆された粒子である。このような絶縁性層は、樹脂、ワックスあるいは無機微粉体等で形成することができる。特に本発明では、フッ素樹脂、(メタ)アクリル樹脂、スチレン樹脂、カルナバロウ、ポリプロピレンまたはポリエチレン等の樹脂またはシリカ等の無機微粉体で形成することが好ましい。

【0050】金属被覆粒子は、絶縁性芯材の表面に導電性金属層が形成された粒子である。ここで絶縁性芯材と

しては、具体的には、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリスチレン、メチルメタクリレート-スチレン共重合体、アクリロニトリル-スチレン共重合体、アクリロニトリル-ブタジエン-スチレン共重合体、ポリカーボネート、ポリメチルメタクリレートなどの各種アクリレート、並びに、ポリビニルブチラール、ポリビニルホルマール、ポリイミド、ポリアミド、ポリエステル、ポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデン、フッ素樹脂、ポリフェニレンオキサイド、ポリフェニレンサルファイト、ポリメチルペンテン、尿素樹脂、メラミン樹脂、ベンゾグアナミン樹脂、フェノール-ホルマリン樹脂、フェノール樹脂、キシレン樹脂、フラン樹脂、ジアリルフタレート樹脂、エポキシ樹脂、ポリイソシアネート樹脂、フェノキシ樹脂およびシリコン樹脂などを挙げることができる。これらの内、特にポリスチレン、ポリメチルメタクリレート、メチルメタクリレート-スチレン共重合体、フェノール樹脂、シリコン樹脂が好ましい。これら樹脂は、単独で使用することもできるし2種以上を混合して使用することもできる。さらにこれらの樹脂は、適宜変性されていてもよい。また必要に応じて架橋剤、硬化剤などの添加剤を添加して反応させることにより架橋構造が形成されたものであってもよく、さらに硬化体であってもよい。

【0051】芯材は、このような樹脂材料を従来公知の方法を利用して粒状にすることにより製造されるが、その粒径が均一であることが好ましい。このような芯材の製造方法としては、具体的には、乳化重合法、ソープフリー乳化重合法、シード乳化重合法、懸濁重合法、非水ディスパーション重合法、分散重合法、界面重合法、in-situ重合法、液中硬化被覆法、液中乾燥法、融解分散冷却法およびスプレードライ法などを例示できる。

【0052】上記のような芯材表面には、ハンダ、Zn、Al、Sb、U、Cd、Ga、Ca、Au、Ag、Co、Sn、Se、Fe、Cu、Th、Pb、Ni、Pd、Be、MgおよびMn等の金属からなる金属層が形成されている。

【0053】このような金属を用いて芯材の表面に金属層を形成する方法としては、例えば、蒸着法、スパッタリング法、イオンプレーティング法、メッキ法、溶射法などの物理的方法を用いることができる他、官能基を有する樹脂からなる芯材表面に必要に応じてカップリング剤などを介して金属を化学結合させる化学的方法、界面活性剤などを用いて金属を芯材表面に吸着させる方法、芯材の材料である樹脂を合成する際に金属粉をモノマー中に分散させ、重合後の樹脂製芯材7の表面に金属粉を吸着させる方法などを挙げることができる。

【0054】このようにして形成された金属層は、粒子を加熱加圧された場合に芯材の変形に追従して変形するように付設されていることが望ましい。さらに、この金属層は単層である必要はなく、複数の層が積層されてい

てもよい。

【0055】絶縁被覆粒子は、上記のように芯材表面に金属層が形成された粒子の表面をさらに、接着の際の加圧（さらに加熱）によって金属層表面が露出するように絶縁性成分で被覆した粒子である。このような絶縁性層は、上記と同様に、樹脂あるいはワックス及び無機微粉体等で形成することができる。特に本発明では、フッ素樹脂、アクリル樹脂、スチレン樹脂、カルナバロウ、ポリプロピレンまたはポリエチレン等の樹脂及びシリカ等の無機微粉体で形成することが好ましい。

【0056】このような絶縁性層は、金属被覆粒子を絶縁性層を形成する樹脂を含有する溶液中に浸漬する方法等、公知の方法を利用して形成することができる。特に本発明では、金属被覆粒子に上記の微粒子状の絶縁性成分を液体を介さずに混合し、必要に応じてさらに圧縮力、剪断力、衝撃力などを加えることにより絶縁性層を形成する、ドライブレンディング法により、この絶縁性層を形成することが好ましい。

【0057】本発明で使用される金属含有粒子の粒子径は、異方導電接着する配線パターンの間隔よりも小さくする。通常、この金属含有粒子の粒子径は、通常は1～50 μm 、好ましくは2～20 μm 、さらに好ましくは2～10 μm の平均粒径を有している。

【0058】また、金属被覆粒子の場合、金属層の平均厚さは、通常は0.01～10.0 μm 、好ましくは0.05～5 μm 、さらに好ましくは0.2～2 μm の範囲内にある。また、金属層は、金属層の厚さ／芯材の直径の比が、通常は、1／100～1／5、好ましくは1／50～1／10の範囲内になるような厚さを有している。

【0059】さらに、絶縁被覆粒子における絶縁性層の平均厚さは、通常は0.01～5 μm 、好ましくは0.1～2 μm 、さらに好ましくは0.2～1 μm の範囲内にあり、芯材の平均粒径に対して、通常1／50～1／5、好ましくは1／20～1／10の厚さを有している。

【0060】さらに本発明で使用される金属含有粒子の平均粒子径は、通常は異方導電性接しようとする配線パターンのうち、導電性粒子が配置される配線パターンのトップの幅の1／2以下、好ましくは1／3以下の平均粒子径を有している。ここで配線パターンのトップのとは、基板上に密接して形成されている配線パターンの上端部の幅をいい、基板と密着した部分の配線パターンの幅をボトム幅という。導電性接着が行われる配線パターンでは、この配線パターンを形成する工程上、配線パターンの上端部、即ちトップ幅の方がボトム幅よりも狭くなっている。すなわち、導電性粒子の平均粒子径が、配線パターンのトップ幅の1／2より大きいと、回路上から回路間に導電性粒子が落ち込み、良好な導通性が得られないことがあり、さらに導電性粒子が大きい場合には、回路間でショートすることがある。また、導電性粒子の平均粒子径が配線パターンのトップ幅の1／1

0より小さい場合には、導電性粒子と配線パターンとの接点が小さくなり、良好な導通性が得られない。

【0061】本発明の異方導電性接着剤において、上記のような金属含有粒子は、絶縁性を有する接着性成分100重量部に対して、通常は1～50重量部、好ましくは5～20重量部の量で配合されている。このような量で金属含有粒子を配合することにより、基板間で良好な導通性を確保できると共に、金属含有粒子を配合したことに伴う基板間の接着強度の低下もない。

【0062】本発明の異方導電性接着剤は、上記のように絶縁性を有する接着成分と、この接着成分中に分散された金属含有粒子とからなり、優れた特性を有しているが、この異方導電性接着剤にさらに特定の粒子径を有する無機微粒子を配合することにより、接着時の組成物における樹脂（接着成分）の流動を抑制することができる。

【0063】すなわち、本発明の異方導電性接着剤には、さらに無機微粒子を配合することができる。ここで使用することができる無機微粒子としては、平均粒子径が、通常は0.01～5.0 μm 、好ましくは0.02～1.0 μm の絶縁性の無機粉体を使用する。さらに、この無機微粒子は、金属含有粒子の通常は1／2以下、好ましくは1／10～1／100の平均粒子径を有している。また、このような無機微粒子としては、粒子径が単一分布のものであっても複分布のものであっても使用可能である。

【0064】このような無機微粒子の具体的な例としては、酸化チタン粉体粒子、二酸化珪素粉体粒子、炭酸カルシウム粉体粒子、燐酸カルシウム粉体粒子、酸化アルミニウム粉体粒子および三酸化アンチモン粉体粒子などを挙げることができる。このような無機微粒子は単独で或いは組み合わせて使用することができる。

【0065】上記のような無機微粒子は、本発明の組成物中に、絶縁性を有する接着性成分100重量部に対して、通常は1.0～50.0重量部、好ましくは3.0～25.0重量部の範囲内の量で配合される。

【0066】本発明の異方導電性接着剤において、接着剤成分と無機微粒子との配合比率は、重量比で100：1～10：1の範囲内にすることにより、特に流動状態が好適に調整された組成物とすることができる。

【0067】このように無機微粒子を配合することにより、加熱加圧接着の際における本発明の異方導電性接着剤の流動性を調整することができる。そして、上記のような無機微粒子を配合することにより、高温時の接着剤の流動およびそれに伴う導電フィラーの移動、導通不良がなくなる。

【0068】本発明の異方導電性接着剤は、上記のように絶縁性を有する接着剤成分、金属含有粒子および必要により配合される無機微粒子を含有しているが、さらに、本発明の異方導電性接着剤の特性を損なわない範囲

内で他の成分が配合されていてもよい。

【0069】例えば、絶縁性を有する接着性成分には、フェノール樹脂、ユリア樹脂、メラミン樹脂およびベンゾグアナミン樹脂等の熱硬化性樹脂、エポキシシラン系カップリング剤のようなシランカップリング剤、イソシアネート系硬化剤、エポキシ系硬化剤、金属キレート剤系硬化剤およびメラミン系硬化剤等の硬化剤、耐候安定剤、耐熱安定剤、染料および顔料などを配合することができる。

【0070】さらに、接着剤成分中には、接着改質剤として、いわゆる粘着付与剤（タッキファイヤー）を添加することもできる。ここで使用することができる粘着付与剤の例としては、クマロンインデン樹脂、アルキルファノール樹脂、変性キシレン樹脂、テルペン樹脂およびロジン変性樹脂などを挙げることができる。このような粘着付与剤を使用する場合、アクリル系接着性成分100重量部に対して、通常は0.01～100重量部、好ましくは5～50重量部である。

【0071】本発明の異方導電性接着剤は、例えばペースト状などの形態で、基板の接着予定面に塗布し、溶剤を除去した後加熱圧着あるいは加圧しながら紫外線などの電子線を照射することにより、異方導電接着することができるが、本発明の異方導電性接着剤を剥離紙等の上に塗布した後溶剤を除去してテープ状あるいはシート状に賦形して使用することもできる。例えば、上述のように、アクリル系接着性成分を不揮発分が20～40重量%になるように溶解または分散させた25℃における粘度が50～500poise/25℃の有機溶媒溶液または分散液に、上述の金属含有粒子を分散させて塗布液を調製し、この塗布液を剥離性を有する基材等上に塗布した後乾燥させることにより、テープ状またはシート状の形態にして使用することができる。

【0072】例えば、テープ状に賦形された本発明の異方導電性接着剤を使用した異方導電性接着は、次のようにして行う。図1に示すように、まず、電極2が形成された一方の基板1の端部の接着予定部3に上面に剥離紙5を有するテープ状の異方導電性接着剤4を載置して、温度20～40℃、時間2～9秒間軽く押さえて基板上にテープ状の異方導電性接着剤4を仮接着する。次いで、剥離紙を除去して、仮接着された異方導電性接着剤4の上から、電極12が形成されたもう一方の基板6を重ね合わせ、位置合わせを行う。次いで、上記のようにして位置合わせされた接着部を加熱すると共に加圧して、基板1と基板6とを本接着する。

【0073】本発明の異方導電性接着剤を用いた場合における本接着の際の加熱温度は、通常は、120～160℃、付与する圧力は10～30kg/cm²、加熱加圧時間は5～10秒であり、従来の異方導電性接着剤を用いた場合よりも加熱温度を低く設定することができ、さらに加熱加圧時間も短縮される。

【0074】上記のようにして接着された2枚の基板間において、配線パターン2、12は、金属含有粒子10によって電氣的に接続される。さらに、加熱加圧することにより、加熱初期の段階では流動性を有する接着剤成分は、基板1、6間を埋め尽くすように流動しながら次第に硬化して基板1および基板6を相互に接着する。

【0075】また、本発明の異方導電性接着剤が光重合開始剤を含有する場合には、上記の方法において、加熱する代わりにガラス基板側から紫外線等のエネルギー線を照射することにより異方導電接着することができる。

【0076】本発明の異方導電性接着剤を用いて上記のようにして異方導電性接着を行うことにより、図2に示すように、対峙する配線パターン2、12間に金属含有粒子13が挟持され、この金属含有粒子によって配線パターン2および12間が電氣的に接続される。他方、配線パターン2、12が形成されていない基板部分は、絶縁性を有する接着成分の硬化体により強固に接着される。

【0077】そして、本発明の異方導電性接着剤は、当初は流動性を有していた接着性成分を、加熱することにより、あるいは光照射をすることにより、この接着性成分が硬化して流動性は消失する。従って、本発明の異方導電性接着剤を用いて接着された基板を長期間過酷な条件に晒しても接着強度等の接着特性および電氣的特性等が変動しにくい。

【0078】また、圧着の際に、従来の異方導電性接着剤よりも穏和な条件で接着することができるので、昨今急速にファインピッチ化が進んでいる配線パターンに対しても、損傷を与えることなく良好に異方導電接着を行うことができる。さらに、圧着時間が短く、加熱温度も低いので、フィルム状の基板に配線パターンが形成されたフレキシブルプリント配線基板、液晶素子用の配線基板等を接着する際にもこれらの基板に損傷を与えることが少ない。

【0079】なお、金属含有粒子として、表面に絶縁層を有する粒子を使用した場合には、配線パターンにより挟持された金属含有粒子の絶縁層は圧力（さらに加熱）によって粒子表面から除去されて金属面が露出し、良好な導電性が発現する。

【0080】

【発明の効果】本発明の異方導電性接着剤は、絶縁性を有する接着剤成分と、この接着性成分中に分散された金属含有粒子からなり、この接着剤成分が、アクリル系接着性成分と、（メタ）アクリロイル基を少なくとも2個有する反応性成分と、重合開始剤とを含有しているので、穏和な条件でしかも短時間に基板を異方導電接着することができる。しかも、本発明の異方導電性接着剤は、加熱あるいは光照射を行う前は流動性を有しているが、加熱あるいは光照射によって硬化体を形成する。従って、本発明の異方導電性接着剤で接着された基板は、

温度の高い場所あるいは温度の高い場所で使用したとしても、その接着性能が低下せず、従って、基板間の電気的特性が変動することがない。

【0081】また、本発明の異方導電性接着剤を用いることにより、接着に要する時間が従来の異方導電性接着剤と異なり、ラジカルの発生による急速な硬化反応によるため短時間で済み、しかも加熱する場合には加熱温度も従来の異方導電性接着剤を用いた場合よりも低温で接着することができる。従って、接着の際の加熱等により電子部品が熱劣化を起こすことが著しく少なくなると共に、例えばフレキシブルプリント配線基板や液晶用配線基板のように比較的耐熱性の低い配線基板を接着する場合でも、配線パターンの剥離等が発生しにくい。

【0082】さらに、本発明の異方導電性接着剤は、低温、低圧、短時間内で、加熱あるいは光照射することによって硬化体を形成できるため、近年、急速に進んでいる高精密回路（ファインピッチパターン）が形成された基板を接着しても、銅箔回路をポリイミドやポリエステルフィルムに固着している接着剤が軟化して回路がずれたり、脱離、損傷を受けたりすることに伴う回路不良又は導通性不良等が発生することがない。

【0083】

【実施例】以下本発明を実施例により説明するが、本発明はこれら実施例に限定されるものではない。

【0084】

アクリル系接着剤(A)	100	重量部
トリメチロールプロパントリアクリレート	10	重量部
ベンゾイルパーオキシサイド	0.1	重量部
シリカ粉末	10	重量部
導電性粒子	15	重量部
N,N,N',N'-テトラグリシジルメタキシレンジアミン	0.02	重量部
シランカップリング剤	5	重量部

上記のようにして製造した異方導電性接着剤フィルムを用いて、

圧着条件: 圧着ヘッド(1.5mm幅×50mm)を使用し130℃×20kgf/cm²×10秒の加熱圧着条件で、TCP(70μmピッチ回路、銅箔回路のトップ幅25μm、ボトム幅30μm、スペース部40μm、300ピン)と液晶基板(ガラス/ITOベタ基板、8Ω/□品)とを加熱圧着した。

【0089】上記のようにして接着したTCP回路の2ピン間の導通抵抗値を測定して結果を導通信頼性として表1に示す。また、表1中「-25・85℃サイクル」は、JIS-C-7021-1977に規定されている方法に準拠して500

アクリル系接着剤(A)	100	重量部
シリカ粉末	10	重量部
導電性粒子	12	重量部
N,N,N',N'-テトラグリシジルメタキシレンジアミン	0.02	重量部
シランカップリング剤	5	重量部

上記の異方導電性接着剤について接着信頼性および導通

【実施例1】常法に従って以下に示す組成のアクリル系接着剤(A)を調製した。

アクリル酸エチル	50	重量部
アクリル酸ブチル	42	重量部
アクリル酸	3	重量部
アクリル酸2-ヒドロキシエチル	5	重量部

上記反応は、反応溶媒としてトルエン、酢酸エチル混合溶媒、重合開始剤としてAIBNを使用して行った。

【0085】得られたアクリル系接着剤(A)のトルエン、酢酸エチル混合溶液は、不揮発分が30重量%であり、この溶液の25℃における粘度は180poise/25℃であった。また、得られたアクリル系接着剤(A)のGPCによるスチレン換算値での重量平均分子量は、50万であった。

【0086】別に、平均粒子径10μmのポリスチレン粒子の表面に厚さ0.2μmのニッケル層を形成し、さらにその上に厚さ0.1μmの金層を形成して導電性粒子を調製した。

【0087】アクリル系接着剤(A)、3官能化合物、熱重合開始剤、シリカ粉末、導電性粒子、N,N,N',N'-テトラグリシジルメタキシレンジアミンおよびシランカップリング剤を下記の量で配合して異方導電性組成物を調製し、これを15μmの厚さで剥離紙上に塗布して異方導電性接着剤フィルムを製造した。

【0088】

100	重量部
10	重量部
0.1	重量部
10	重量部
15	重量部
0.02	重量部
5	重量部

サイクル繰り返した時の抵抗値を示す。

【0090】さらに、JIS-Z-0237に従って接着強度を測定した結果を接着信頼性として表1に示す。なお、表1において、「初期値」とは、上記の条件で加熱圧着した後、23℃、65%RHの条件で2時間放置した後の値であり、「高温高湿試験」とは80℃、90%RHで500時間放置した後の値であり、「高温試験」とは、100℃で500時間放置した後の値である。

【0091】

【比較例1】実施例1において、組成を下記のように変えた以外は同様に異方導電性接着剤を製造した。

【0092】

100	重量部
10	重量部
12	重量部
0.02	重量部
5	重量部

信頼性を表1に示す。

【0093】

【比較例2】実施例1において、組成を下記のように変

アクリル系接着剤(A)	100	重量部
エポキシ樹脂(日本エポキシ(株)製、不揮発分100%)	100	重量部
エピキュアー3010(油化シェルエポキシ(株)製)	2.5	重量部
シリカ粉末	35	重量部
導電性粒子	30	重量部
シランカップリング剤	5	重量部

上記の異方導電性接着剤について接着信頼性および導通信頼性を表1に示す。

【0095】

【実施例2】アクリル系接着剤(A)、3官能化合物、光重合開始剤、シリカ粉末、導電性粒子、4,4-ビス(ジエ

アクリル系接着剤(A)	100	重量部
トリメチロールプロパントリアクリレート	10	重量部
ベンゾインエチルエーテル	0.5	重量部
4,4-ビス(ジエチルアミノ)ベンゾフェノン	0.2	重量部
シリカ粉末	10	重量部
導電性粒子	15	重量部
シランカップリング剤	5	重量部

上記のようにして製造した異方導電性接着剤フィルムを用いて、圧着ヘッド(1.5mm幅×50mm)を予め90℃に加熱し、TCP(70μmピッチ回路、300ピン)と液晶基板(ガラス/ITOベタ基板、8Ω/□品)とを20kgf/cm²の圧力で圧着しながら、ガラス基板側より、高圧水銀ランプを10秒間照射した。

【0097】この高圧水銀ランプの波長は3000~4

えた以外は同様にして異方導電性接着剤を製造した。

【0094】

テルアミノ)ベンゾフェノンおよびシランカップリング剤を下記の量で配合して異方導電性組成物を調製し、これを15μmの厚さで剥離紙上に塗布して異方導電性接着剤フィルムを製造した。

【0096】

000オングストロームであり、照射総エネルギーは、1600mW・sec/cm²であった。上記のようにして接着したTCP回路の2ピン間の接着信頼性および導通信頼性を表1に示す。

【0098】

【表1】

表1

	接着信頼性			導通信頼性(抵抗値)					
	接着力		耐定荷重試験	高温高湿試験		高温試験		-25℃・85℃91%RH	
	初期 (gf/cm)	高温高湿 (gf/cm)		初期 (Ω)	500hr (Ω)	初期 (Ω)	500hr (Ω)	初期 (Ω)	500hr (Ω)
実施例1	1200	1500	24hr後剥離なし	1.8	2.5	1.8	2.2	1.8	2.2
比較例1	950	1200	24hr以内に落下	2.0	1000以上	2.0	500以上	2.0	1000以上
比較例2	100	1100	30分以内に落下	10	1000以上	10	1000以上	10	1000以上
実施例2	1000	1400	24hr後剥離なし	2.0	2.8	2.1	2.5	2.0	2.4

【図面の簡単な説明】

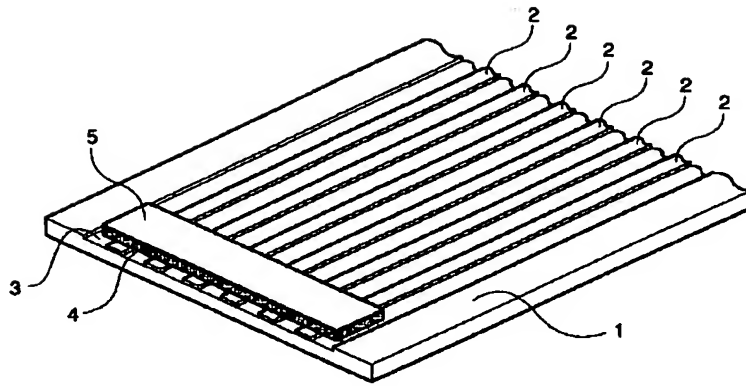
【図1】 図1は、本発明の異方導電性接着剤を用いて配線パターンを接着する際の状態を模式的に示す図である。

【図2】 図2は、接着された配線パターンの状態を模式的に示す断面図である。

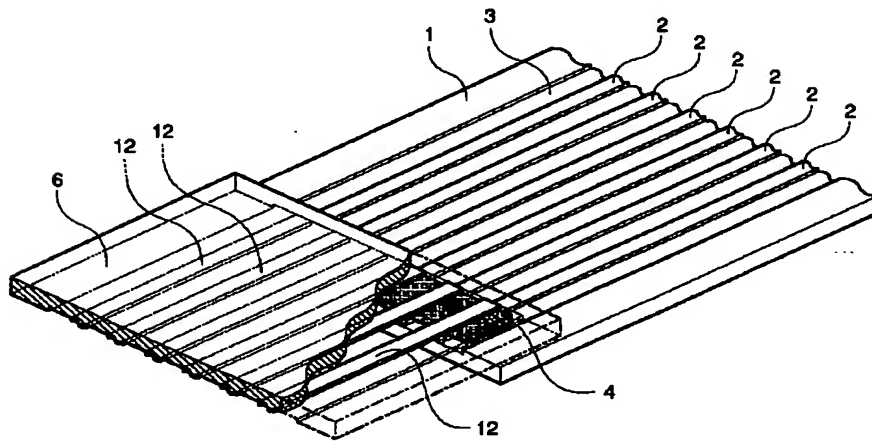
【符号の説明】

- 1, 6 基板
- 2, 12 配線パターン
- 3 接着予定面
- 4 異方導電性接着剤フィルム
- 5 剥離紙

【図1】



【図2】



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.